# See English Equivalent US 5,827,912 RUBBER COMPOUND CONTAINING OLIGOMER SILANE

Patent number:

JP9003248

Publication date:

1997-01-07

Inventor:

**TOOMASU SHIYORU** 

**Applicant:** 

**BAYER AG** 

Classification:

- international:

C08L21/00; B60C1/00; C08K5/54; C08G75/02

- european:

C08K5/548

Application number: JP19960172835 19960613

Priority number(s): DE19951021799 19950616; DE19951049027 19951228

Also published as:

EP0748839 (A1) US5827912 (A1)

DE19549027 (A1) EP0748839 (B1)

Report a data error here

Abstract not available for JP9003248

Abstract of corresponding document: US5827912

The rubber compounds according to the invention, containing a rubber, an oligomeric silane of formula (I), a filler and optionally other rubber auxiliary agents R1R2R3Si-X1-(-Sx-Y-)m-(-Sx-X2-SiR1R2R3)n (I), are used for the manufacture of molded rubber bodies, particularly tires, that have low rolling resistance and increased dynamic and thermal stability.

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

I HIS PAGE BLANK (USPTO,

## (19)日本国特許庁(JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

# 特開平9-3248

(43)公開日 平成9年(1997)1月7日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	ΓI			技術表示箇所	
C08L 21/00	KDV		C08L 2	1/00	KDV		
B60C 1/00		7504-3B	B 6 0 C	1/00	Z		
C08K 5/54			C08K	5/54			
// C08G 75/02	NTV		C08G 7	5/02	NTV		
			審査請求	未請求	請求項の数 1	FD (全 8 頁)	
(21)出願番号	特顧平8-172835		(71)出願人	3900236	07		
				パイエル	レ・アクチエング	<b>プゼルシヤフト</b>	
(22)出願日	平成8年(1996)6	月13日	,	BAYER AKTIENGESELLS			
				CHAF	T		
(31)優先権主張番号	19521799.	. 3		ドイツ選	連邦共和国デー5	1368 レーフエル	
(32)優先日	1995年6月16日			クーゼン	/ (番地なし)		
(33)優先権主張国	ドイツ (DE)		(72)発明者	トーマス	<b>く・シヨル</b>		
(31)優先権主張番号	19549027	4		ドイツ5	1469ベルギツシ	ユグラートパツ	
(32)優先日	1995年12月28日			ハ・アル	<b>ヽ・アルテピツペルフユルターシユトラー</b>		
(33)優先権主張国	ドイツ (DE)			セ24アー	-		
			(74)代理人	弁理士	小田島 平吉		

# (54) 【発明の名称】 オリゴマー性シランを含むゴム化合物

(57)【要約】

【課題】 低い耐ローリング性並びに増大された動的及

適するゴム化合物の提供。

【解決手段】 ゴム、式(I)

び熱的安定性を有するゴム成形体、殊にタイヤの製造に

 $R^{1}R^{2}R^{3}Si-X^{1}-\left(-S_{\chi}-Y-\right)_{m}-\left(-S_{\chi}-X^{2}-SiR^{1}R^{2}R^{3}\right)_{n}$ (I)

のオリゴマー性シラン、フィラー及び随時他のゴム補助

剤を含むゴム化合物。

### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 ゴム、フィラー、随時他のゴム補助剤及

 $R^{1}R^{2}R^{3}Si - X^{1} - (-S_{X} - Y -)_{a} - (-S_{X} - X^{2} - SiR^{1}R^{2}R^{3})_{n}$  (I)

び少なくとも1つの式(I)

式中、R1、R2及びR3は同一もしくは相異なり、かつ 随時酸素、窒素または硫黄原子を含有し得るC1~C18-アルキルまたはC<sub>1</sub>~C<sub>18</sub>アルコキシ基を表わすか、或  $NdC_6 \sim C_{12} P U - U \cdot C_6 \sim C_{12} P U - U + V + V \cdot C_6$ <sub>7</sub>~C<sub>18</sub>アルキルアリールまたはC<sub>7</sub>~C<sub>18</sub>アルキルアリ ールオキシを表わし、但し基R1~R3の少なくとも1個 はアルコキシ、アリールオキシまたはアルキルアリール オキシ基であり; X¹及びX²は同一もしくは相異なり、 かつ直鎖状、分枝鎖状もしくは環式で、随時不飽和のC 1~C1,アルキレン基を表わし、Yは随時C6~C1,アリ ール、C<sub>1</sub>~C<sub>8</sub>アルコキシまたはヒドロキシ基で置換さ れていてもよく、かつ随時酸素、窒素もしくは硫黄原子 または芳香族C6~C12基を含んでいてもよい直鎖状、 分枝鎖状もしくは環式で、随時不飽和のC<sub>1</sub>~C<sub>18</sub>アル キレン基、並びにC<sub>6</sub>~C<sub>12</sub>アリーレン基をまたはヘテ ロアリーレン基を表わし、mは1~20の全数を表わ し、nは1~6の全数を表わし、そしてxは1~6の数 を表わす、のシランを含み、ここにシラン(1)を各々 の場合に用いるゴムの量を基準として0.1~15重量 %の量で用いるゴム化合物。

#### 【発明の詳細な説明】

【0001】本発明は新規なオリゴマー性シラン(I)を含むゴム化合物並びにゴム加硫物の製造に対するこれらのゴム化合物の使用に関する。本発明によるゴム化合物は成形体の製造、殊に低い耐ローリング性並びに増大された動的及び熱的安定性を有するタイヤの製造に適する。

【0002】改善されたヒステリシス挙動を有する加硫物は公知であるが、これらのものは数種の望ましくない特性を有する。かくてヨーロッパ特許第253,365号にあるニトロアミンをベースとするヒステリシス改善剤が記載される。しかしながらニトロ転移の危険性のために、ニトロ及びニトロソ基を含まぬゴム補助剤が望ましい。また米国特許第4,690,965号のニトロソア

 $R^{1}R^{2}R^{3}Si - X^{1} - (-S_{X} - Y -)_{a} - (-S_{X} - X^{2} - SiR^{1}R^{2}R^{3})_{n}$  (I)

式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 及び $R^3$ は同一もしくは相異なり、かつ随時酸素、窒素または硫黄原子を含有し得る $C_1 \sim C_{18}$  アルキルまたは $C_1 \sim C_{18}$  アルキルまたは $C_1 \sim C_{18}$  アルコキシ基を表わすか、或いは $C_6 \sim C_{12}$  アリール、 $C_6 \sim C_{12}$  アリールオキシ、 $C_7 \sim C_{18}$  アルキルアリールまたは $C_7 \sim C_{18}$  アルキルアリールオキシを表わし、但し基 $R^1 \sim R^3$  の少なくとも1個はアルコキシ、アリールオキシまたはアルキルアリールオキシ基であり; $X^1$ 及び $X^2$ は同一もしくは相異なり、かつ直鎖状、分枝鎖状もしくは環式で、随時不飽和の $C_1 \sim C_{12}$  アルキレン基を表わし、Yは随時 $C_6 \sim C_{12}$  アリール、 $C_1 \sim C_8$  アルコキシまたはヒドロキシ基で置換されていてもよく、かつ随時酸素、窒素もしくは硫黄原子

ニリンに関して同様の権利が存在する。更に特殊なジフェニルスルフィドを含む減少されたヒステリシス損失を有するゴム加硫物はヨーロッパ特許第366,952号から公知である。これらの添加剤は天然ゴム中で有効でなく、そして加えてまたこのものを分解させることが1つの欠点である(これに関しては米国特許第2,470,948号参照)。ドイツ国特許出願公開第2,141,159号、同第2,141,160号及び同第2,225,577号において自動車用タイヤの耐ローリング性の改善に使用し得るオリゴシランが記載される。しかしながら、この発明の目的は減少された耐ローリング性に加え

てタイヤの製造及び使用中の熱安定性並びにその動的耐 疲労を改善することでもあった。このことは本発明のオ

リゴマー性シランを用いて達成される。

【0003】ドイツ国特許出願公開第2,265,382号に増大された熱安定性を有する加硫物を生じさせるゴムの交叉結合に対するポリスルフィド誘導体が記載される。ヨーロッパ特許第385,072号及び同第530,590号に同様の化合物が記載される。しかしながら、加硫物の機械特性は損失を受ける。このことはその減少された引張強さ及び損なわれた摩耗挙動から明らかになる。その他、加硫中にヨーロッパ特許第385,072号及び同第530,590号の化合物は加硫中に望ましくないニトロソアミンを生成させ得る第2級アミンを放出する。

【0004】本発明によるオリゴマー性シラン(I)により、低い動的ダンピング、改善された熱安定性及び改善された動的安定性を有する加硫物が得られ、従ってこのことから品質を損なわずに高温で短時間にゴム製品を製造するか、または高い使用温度で長期間ゴム部品を使用し得ることが見い出された。

【0005】従って本発明はゴム、フィラー、随時他のゴム補助剤及び少なくとも1つの式(I)

または芳香族 $C_6 \sim C_{12}$ 基を含んでいてもよい直鎖状、分枝鎖状もしくは環式で、随時不飽和の $C_1 \sim C_{18}$  アルキレン基、並びに $C_6 \sim C_{12}$  アリーレン基をまたはヘテロアリーレン基を表わし、mは $1 \sim 20$ の全数を表わし、nは $1 \sim 6$ の全数を表わし、そしてxは $1 \sim 6$ の数を表わす、のシランを含み、ここにシラン(I)を各々の場合に用いるゴムの量を基準として $0.1 \sim 15$ 重量%の量で用いるゴム化合物を提供する。

【0006】殊に好適な本発明による化合物は例えばX<sup>1</sup>及びX<sup>2</sup>がメチレン、プロピレン、ブチレン、ペンチレンまたはヘキシレン基を表わし、Yがメチレン、エチレン、プロピレン、ブチレン、ヘキシレン、シクロヘキシ

レン、オクチレン、デシレン、ドデシレン、2.2'-オキシエチレン、メチレンビス(2.2'-オキシエチレン)、2.2'-オキジエチレン)、2.2'-オオジエチレン、N-メチル-N',N''-ジエチレンまたは $\alpha$ , $\alpha$ -p-キシリデン基或いは1,2,3-プロピリデン、N,N',N''-トリエチレンまたは1,3,5-s-トリアジニンの如き基を表わし、nが1~6の全数を表わし、mが1~10の全数を表わし、そしてnが1~6の全数を表わす式(1)のものである。本発明による化合物は一定の分子量を有する単一の化合物及び分子量分布を有するオリゴマー混合物の両方として存在し得る。プロセス技術のために、オリゴマー性または高分子混合物を製造し、そして使用することが多くの場合に簡単である。

【 0 0 0 7 】 本発明によるシラン ( I ) は種々の方法で製造し得る:

A: HC1の除去を伴なうメルカプト基含有シラン並び にジ-及び/または高分子メルカプタンと二塩化硫黄ま たは二塩化二硫黄との反応による。反応は公知の方法で そのままで-30~80℃の温度で随時溶媒例えばアル コールまたは芳香族炭化水素中にて行い得る:

 $R^{1}R^{2}R^{3}Si-X-SH + HS-Y-SH + S_{x}-C1_{2} \rightarrow R^{1}R^{2}R^{3}Si-X-S$  $_{x+2}(Y-S_{x+2})_{m}-X-SiR^{1}R^{2}R^{3} + HC1$ 

反応を行うための方法に対しては例えばホーベン・ウェイル (Houben Weyl)、メトーデン・デル・オルガニッシェン・ヘミー (Methoden der organischen Chemie)、第9巻、88頁以下(1955)及び第E11

巻(1985)、チーメ・ベルラグ(Thieme Verlag)、シュシッツガルト参照。

【0008】B:化合物(I)の製造はポリアルキルシリルエーテル及びポリハロゲン化物をアルコール性溶媒の存在下にて-20~120℃の温度で金属ポリサルファイドと反応させる場合に殊に好適に行い得る:

 $R^1R^2R^3Si-X-Hal + Hal-Y-Hal + Na_2S_x \rightarrow R^1R^2R^3Si-X -S_x (X-S_x)_m-X-SiR^1R^2R^3 + NaHal$ 

好適に用いられる金属ポリサルファイドは式Me<sub>2</sub>S<sub>x</sub>のものであり、ここにMeはリチウム、ナトリウムまたカリウムを表わし、そして×は2~6の数を表わす。

【0009】アルコール例えばメタノール、エタノール、n-プロパノール、i-プロパノール、i-ブタノール、アミルアルコール、ヘキシルアルコール、n-オクタノール、i-オクタノール、1・オクタノール、1・オークタノール、1・4-ブタンジオール、1・6-ヘキサンジオール並びにこれらのアルコールと芳香族、脂肪族または環式脂肪族炭化水素、例えばトルエン、シクロヘキサン、ヘキサン、オクタンまたは開鎖もしくは環式エーテル例えばジエチルエーテル、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、1・3-ジオキサン及びそのアルコールとの混合物との混合物を溶媒として好適に用いる。

【0010】殊に好適な化合物(I)は式 【0011】 【化1】

【
$$0012$$
】式中、 $R=CH_3$ 、 $C_2H_5$ 、

 $x=1\sim6$ 

 $n=1\sim 10$ 

 $m=1\sim 10$ ,

[0013]

【化2】

$$\begin{array}{c|c} OR & OR \\ \hline CH_3Si-CH_2-S_x & \hline \\ OR & OR \\ \hline \end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
OR \\
CH_3Si-CH_2-S_1-CH_2-SiCH_3 \\
OR
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
OR \\
CH_2-SiCH_3 \\
OR
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
CH_2-SiCH_3 \\
OR
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c}
CH_2-SiCH_3 \\
OR
\end{array}$$

【0014】式中、R=CH<sub>3</sub>、C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>、

$$x=1\sim6$$

n=1~10、 に対応する。

【0015】本発明による式(I)のオリゴマー性シランの添加並びにフィラーの添加は好ましくは $100\sim2$ 00 $\mathbb C$ 0組成物温度に行う。しかしながらまた、後でより低い温度( $40\sim100\mathbb C$ )で例えば他のゴム補助剤と一緒に行い得る。

【0016】本発明によるオリゴマー性シラン(I)は純粋な状態及び不活性有機または無機担体に塗布された状態の両方で混合工程に加え得る。好適な担体材料はシリカ、天然もしくは合成ケイ酸塩、酸化アルミニウムまたはカーボンブラックである。

【0017】本発明によるゴム化合物に適するフィラー は次のものである:

ーカーボンブラック。この場合に用いるカーボンブラックは火炎スス、炉またはチャンネルブラック法により製造され、そして $20\sim200\,\mathrm{m}^2/\mathrm{g}$ の表面積を有する例えばSAF、ISAF、IISAF、HAF、FEFまたはGPFブラックである。

【0018】-例えばケイ酸塩の溶液の沈殿またはハロゲン化ケイ素の火炎加水分解により製造され、5~1000、好ましくは20~400m²/g(BET表面積)の比表面積及び10~400nmの一次粒子径を有する高分散性シリカ。またシリカは随時他の金属酸化物例えばAI、Mg、Ca、Ba、Zn及びTi酸化物との混合酸化物として存在し得る。

【0019】-20~400m²/gのBET表面積及び10~400nmの一次粒子径を有する合成ケイ酸塩例えばケイ酸アルミニウム、アルカリ土金属ケイ酸塩例えばケイ酸マグネシウムまたはケイ酸カルシウム。

【0020】-天然ケイ酸塩例えばカオリン及び他の天然に生じるシリカ。

【0021】-ガラス繊維及びガラス繊維生成物(マット、ロビング)またはガラス微小球。

【0022】各々の場合にゴム100部を基準として5~150重量部の量の20~400m²/gのBET表面積を有するカーボンブラックまたは20~400m²/gのBET表面積を有するケイ酸塩の溶液の沈殿により製造される高分散性シリカを好適に用いる。

【0023】上記のフィラーを単独にか、または混合物として使用し得る。本法の殊に好適な具体例において、各々の場合にゴム100重量部をベースとして随時0~100重量部のカーボンブラックと一緒にした10~150重量部の薄く着色したフィラー、並びに0.3~10重量部の式(I)の化合物を本化合物の製造に用いる。

【0024】天然ゴムに加え、合成ゴムも本発明によるゴム化合物の製造に適する。好適な合成ゴムは例えばW. ホフマン(Hofmann)、ゴム技術(Rubber Technology)、ジエントナー、ベルラグ(Gentner Verla

g)、シェツッツガルト1980に記載される。これら のものには殊に

BR-ポリブタジエン

ABR-ブタジエン/アクリル酸- $C_{1\sim4}$ アルキルエステル共重合体

IR-ポリイソプレン

SBR-1~60、好ましくは2~50重量%のスチレン含有量を有するスチレン/ブタジエン共重合体 XSBR-2~50重量%のスチレン含有量及び1~30重量%の共重合された極性単量体の含有量を有するスチレン/ブタジエン共重合体及び他の不飽和極性単量体 例えばアクリル酸、メタクリル酸、アクリロニトリル、アクリル酸ヒドロキシエチル、メタクリル酸ヒドロキシエチルとのグラフト重合体

IIR-イソブチレン/イソプレン共重合体 NBR-5~60、好ましくは10~50重量%のアク リロニトリル含有量を有するブタジエン/アクリロニト リル共重合体

HNBR-部分的また十分に水添したNBRゴム EPDM-エチレン/プロピレン/ジエン共重合体 並びにこれらのゴムの混合物を含む。自動車用タイヤの 製造に殊に興味あるものは例えばヨーロッパ特許出願公 開第447,066号に記載される種類の随時シリルエーテルまたは他の官能基で改質化され得る−50℃以上のガラス転移温度を有する陰イオン重合されたL-SB Rゴム並びにそのジエンゴムとの配合物である。

【0025】本発明によるゴム加硫物はゴム産業に公知である他のゴム補助剤生成物例えば反応加速剤、抗老化剤、熱安定剤、光保護剤、抗オゾン剤、処理助剤、可塑剤、増粘剤、ブローイング剤、染料、顔料、ワックス、伸展剤、界面活性剤、乳化剤、硫黄を含まぬシリルエーテル、ポリシロキサン、ヒドロキシ含有ポリジメチルシロキサン、有機酸、耐燃剤、金属酸化物並びに活性剤例えばトリエタノールアミン、ポリエチレングリコール及びヘキサントリオールを含有し得る。

【0026】ゴム補助剤は殊に用途に依存して通常の量で用いる。通常量はゴムをベースとして例えば0.1~50重量%の量である。

【0027】オリゴマー性シランは交叉結合剤として単独で使用し得る。カーボンブラックがフィラーのみであるか、またはドイツ国特許出願公開第4,406,947.2号に記載されない式Iのかかるシランを用いる場合、他の交叉結合剤の添加も推奨される。他の公知の交叉結合剤として硫黄または過酸化物を使用し得る。加えて、本発明によるゴム化合物は加硫加速剤を含有し得る。適当な加硫加速剤の例にはメルカプトベンゾチアゾール及び-スルフェンアミド、グアニジン、チウラム、ジチオカルバメート、チオ尿素及びチオカーボネートがある。加硫加速剤及び(カーボンブラックの場合)硫黄または過酸化物はゴムをベースとして0.1~10重量

n = 3

実施例1の方法に従った。無水硫化ナトリウム234g (3モル)をエタノール1020ml及びトルエン441 ml中で硫黄288g (9モル)、3-クロロプロピルトリエトキシシラン367.8g (1.53モル)及び1,6-ジクロロヘキサン355.9g (2.295モル)と反応させた。褐色の油861gが得られた。

【0044】元素分析:

[0045]

【表5】

	С	Н	S	Si	-
計算值	36. 8	6. 6	43. 6	4.8	%
実謝値	36. 7	6. 5	43. 2	4. 7	%

【0046】実施例6(ゴム化合物及び加硫物の製造) 次の化合物を内部混合機中にて140℃で5分以内に製造した。最後に、硫黄及び加速剤並びに式Iの生成物を 50℃で加えた。

【0047】 【表6】

	A*	B*	С	D	E	F
E-SBR Buna EM 1712(HULS)	103	103	103	103	103	103
E-SBR Bunz EM 1500(HULS)	25	25	25	25	25	25
カーボンブラックN339	80	80	80	80	80	80
ステアリン酸	2	2	2	2	2	2
酸化亜鉛	5	5	5	5	5	5
抗オゾン剤Vulcanox 4020(Bayer)	1	1	1	1	t	1
酸化防止剂Vulcanox RS(Bayer)	1	1	1	1	1	1
硫黄	1.	5 1. 2	1. 2	2 1.	2 0	0
CBS, Vulkacite CZ(Bayer)	1. 3	2				
ドイツ国特許出願公開第2, 255, 577号に よるビス(トリエトキシシリル-プロピル	3					
テトラスルフィド	0	1	0	0	0	0
実施例2による化合物	0	0	1	0	2	0
実施例5による化合物	0	0	0	1	0	2
DIN53, 529による190℃での45分後の トルクレベル(最高%)	84	90	96	96	100	100%
*比較例						

【0048】次にゴム化合物の加硫挙動を190℃でFrank-Vulkameter DIN 53529, Bayer System中にて試験した。表中、45分後のトルクレベルを最大値の%として表わす。従って高い値は熱的に安定した加硫物に対応し、そして低い値は熱的に不安定な加硫物に対応する:本発明による化合物を用いて熱安定性に関して顕著な利点が得られることは明らかである。

【0049】実施例7

下記の化合物を内部混合機中にて140℃で5分以内に

製造した。化合物を冷却した後、再度内部混合機中にて3分間混練した。最後に次の加速剤を50℃で加えた:N-シクロヘキシルメルカプトベンゾチアゾールスルフェンアミド(Vulkacit CZ)、ジフェニルグアニジン(Vulkacit D)及びテトラベンジルチウラムジスルフィド。加硫を160℃で40分以内で行った。【0050】

【表7】

	G	Est.
化合物の成分:		
L-SBR Buna VSL 1954 S 25(Bayer)	75	75
BR Buna CB 11(Bayer)	25	25
シリカ:Yulkasil S(Bayer)	80	80
カーボンブラック:Corax N 339	6	6
芳香族油:Renopal 450(Rheinchemie)	32. 5	32. 5
酸化亜鉛	2. 5	2. 5
抗オゾン剤: Yulkanox 4020(Bayer)	1	1
抗オゾン剤ワックス: Antilux 654(Rheinchemie	) 1.5	1. 5
実施例2による化合物	6.5	_
ドイツ国特許出願公開第2, 255, 577号による ビス-(トリエトキシシリルプロピル)-		
テトラスルフィド		<b>6</b> . 5
N-シクロヘキシルーメルカプトペンゾチアゾール スルフェンアミド/Vulkacit CZ(Bayer)	1.5	1.5
テトラベンジルチウラムジスルフィド/		
Perkacit TBzTB(Akzo)	0. 2	0. 2
ジフェニルグアニジン/Yulkacit D(Bayer)	2	2
加硫動力学:	_	_
Monsanto MDR 2000 160℃		
t-06(分)	3. 2	8. 6
t-9D(分)	18. 7	
加硫物の特性:		10.0
160℃での加硫/40分		
100%伸びでのモジュラス値(WPa)	2.4	1.8
300%伸びでのモジュラス値(MPa)	7. 5	4. 9
引張強さ(MPa)	-	14. 4
破断時の伸び(光)	610	685
23℃での硬さ(ショアA)	68	62
70℃での硬さ(ショアA)	62	51
23℃での弾性(%)	25	24
70℃での弾性(%)	41	38
摩耗(DIN 53 516)	98	105
_60℃でのタン・デルタ	0.	15 0. 184
*=比较例		

【0051】測定された物理値は本発明による化合物は 比較化合物よりゴムの加硫にかなり有効であることを示 す。

【0052】本発明の主なる特徴及び態様は以下のとお

式中、R1、R2及びR3は同一もしくは相異なり、かつ 随時酸素、窒素または硫黄原子を含有し得るC1~C18 アルキルまたは $C_1 \sim C_{18}$ アルコキシ基を表わすか、或  $\text{N4C}_6 \sim \text{C}_{12} \text{PJ} - \text{N}, \text{C}_6 \sim \text{C}_{12} \text{PJ} - \text{NJ} + \text{N}, \text{C}$ γ~C<sub>18</sub>アルキルアリールまたはC<sub>7</sub>~C<sub>18</sub>アルキルアリ ールオキシを表わし、但し基R1~R3の少なくとも1個 はアルコキシ、アリールオキシまたはアルキルアリール オキシ基であり; X¹及びX²は同一もしくは相異なり、 かつ直鎖状、分枝鎖状もしくは環式で、随時不飽和のC  $_{1}$ ~ $C_{12}$ アルキレン基を表わし、Yは随時 $C_{6}$ ~ $C_{12}$ アリ ール、C<sub>1</sub>~C<sub>8</sub>アルコキシまたはヒドロキシ基で置換さ れていてもよく、かつ随時酸素、窒素もしくは硫黄原子 りである。

【0053】1.ゴム、フィラー、随時他のゴム補助剤 及び少なくとも1つの式(I)

 $R^{1}R^{2}R^{3}Si - X^{1} - (-S_{\chi} - Y -)_{m} - (-S_{\chi} - X^{2} - SiR^{1}R^{2}R^{3})_{n}$ (I)

> または芳香族C6~C12基を含んでいてもよい直鎖状、 分枝鎖状もしくは環式で、随時不飽和のC<sub>1</sub>~C<sub>18</sub>アル キレン基、並びにC<sub>6</sub>~C<sub>12</sub>アリーレン基をまたはヘテ ロアリーレン基を表わし、mは1~20の全数を表わ し、nは1~6の全数を表わし、そしてxは1~6の数 を表わす、のシランを含み、ここにシラン(I)を各々 の場合に用いるゴムの量を基準として0.1~15重量 %の量で用いるゴム化合物。

> 【0054】2. ゴム加硫物の製造に対する上記1に記 載のゴム化合物の使用。

> 【0055】3. タイヤの製造に対する上記1に記載の ゴム化合物の使用。

THIS PAGE BLANK (USPTO,